

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-179417

(P2002-179417A)

(43) 公開日 平成14年6月26日 (2002. 6. 26)

(51) Int.Cl.⁷

識別記号

F I

テームト* (参考)

C 0 1 B 31/02

1 0 1

C 0 1 B 31/02

1 0 1 F 4 G 0 4 6

B 8 2 B 3/00

B 8 2 B 3/00

審査請求 未請求 請求項の数30 O L 外国語出願 (全 43 頁)

(21) 出願番号 特願2000-375044(P2000-375044)

(22) 出願日 平成12年12月8日 (2000. 12. 8)

(71) 出願人 000002185

ソニー株式会社

東京都品川区北品川6丁目7番35号

(72) 発明者 黄 厚金

東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニ
ー株式会社内

(72) 発明者 梶浦 尚志

東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニ
ー株式会社内

(72) 発明者 宮腰 光文

東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニ
ー株式会社内

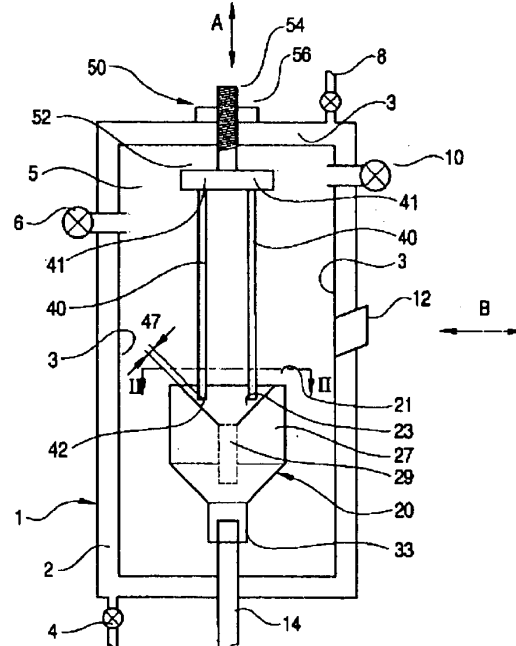
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 カーボンナノ構造体の合成用のアーク電極

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】カーボン含有電極の消費、又は化学気相成長プロセスによってカーボンナノ構造物を合成するためのアークプラズマ放電用電極の配列体を提供する。

【解決手段】チャンバー内に配置された第1電極及び2個以上の第2電極よりなり、第1電極は触媒を保持するために中に複数の穴付き斜面を有する。更に、第1電極は、貫通していない孔か貫通孔のどちらでもよい中央孔を有する。貫通していない孔は、電極の斜面から滑り落ちる堆積物を収集する。貫通孔は、煤及びカーボンナノ構造体を前記チャンバーから取り出すことが出来、有機蒸気をチャンバーへ導入することも出来る。貫通孔より導入すると、カーボンナノ構造体が電極から外れることなく堆積されるように有機蒸気がアークプラズマ領域を通過する。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】 チャンバー；第 1 端部、第 2 端部、及び前記第 1 端部と前記第 2 端部の間に延在する本体を有する第 1 電極であって、前記第 1 電極は前記チャンバーの中に配置され、かつ陽電位と陰電位のうちの 1 個に接続されること；及び第 1 端部及び第 2 端部を各々有する少なくとも 2 個の第 2 電極であって、前記少なくとも 2 個の第 2 電極は前記チャンバーの中に配置され、かつ前記陽電位と陰電位のうちの別の 1 個である第 2 電位に接続され、その場合前記少なくとも 2 個の第 2 電極の前記第 2 端部は、前記第 2 電極の各々と前記第 1 電極との間に間隙を形成するように前記第 1 電極の第 1 端部に対向して配置され、

その場合前記第 1 電極及び前記少なくとも 2 個の第 2 電極の少なくとも 1 個はカーボンを含むこと、を特徴とするカーボンナノ構造体の製造用のアーク電極組立体。

【請求項 2】 前記第 1 電極本体がその中に中央孔を有し、縦軸を定義すること、更に前記第 1 電極の第 1 端部が前記縦軸に斜めの方向に延在する斜面を含むこと、更に前記少なくとも 2 個の第 2 電極の前記第 2 端部が前記間隙を形成するように前記斜面に対向して配置されることを特徴とする、請求項 1 に記載のアーク電極組立体。

【請求項 3】 前記中央孔が、底面を形成するように前記斜面から前記第 1 電極本体へ延在する貫通していない孔であることを特徴とする、請求項 2 に記載のアーク電極組立体。

【請求項 4】 好ましくない副生物は前記中央孔に収集されるように前記第 1 電極が少なくとも 2 個の第 2 電極の下に配置されることを特徴とする、請求項 3 に記載のアーク電極組立体。

【請求項 5】 前記斜面がその中に形成された複数の穴を有することを特徴とする、請求項 2 に記載のアーク電極組立体。

【請求項 6】 前記複数の穴が異なる深さの穴を含むことを特徴とする、請求項 5 に記載のアーク電極組立体。

【請求項 7】 前記第 1 電極本体は管状であって、前記チャンバーから前記中央孔を通過して物質を圧送するように前記アーク電極組立体は更に前記中央孔に連通するポンプを含むように前記中央孔が前記第 1 電極を完全に貫通して延在することを特徴とする、請求項 2 に記載のアーク電極組立体。

【請求項 8】 更に、前記中央孔を通して圧送される物質を受け容れるように前記ポンプと前記中央孔の間に配置された収集箱を含むことを特徴とする、請求項 7 に記載のアーク電極組立体。

【請求項 9】 更に、前記第 2 電極は互いに可動で、かつ第 1 電極に対して可動であるように前記第 2 電極第 1 端部及び前記チャンバーに接続された調節機構を含むことを特徴とする、請求項 1 に記載のアーク電極組立体。

【請求項 10】 前記第 1 電極が前記少なくとも 2 個の

第 2 電極の下に配置されること；前記第 1 電極がアノードとして作用するように前記第 1 電位は陽であり、前記少なくとも 2 個の第 2 電極がカソードとして作用するように前記第 2 電位は陰であること；及び前記第 1 電極本体がその中に中央孔を有し、かつ縦軸を定義することであって、前記第 1 電極本体は管状であるように前記中央孔は前記第 1 電極を完全に貫通して延在することによりガスが前記中央孔を前記中央孔の中に導入されることが出来ること、を特徴とする、請求項 1 に記載のアーク電極組立体。

【請求項 11】 前記少なくとも 2 個の第 2 電極が互いに間を置いて配置され、かつ集束型アークを発生するように前記第 1 電極から間隔を置いて配置されることを特徴とする、請求項 1 に記載のアーク電極組立体。

【請求項 12】 前記第 1 電極が、前記少なくとも 2 個の第 2 電極に関して回転するように取り付けられることを特徴とする、請求項 1 に記載のアーク電極組立体。

【請求項 13】 前記第 1 電極がグラファイトで作られ、前記少なくとも 2 個の第 2 電極がカーボンで作られることを特徴とする、請求項 1 に記載のアーク電極組立体。

【請求項 14】 チャンバー；前記チャンバーに配置された第 1 電極であって、前記第 1 電極は第 1 端部、第 2 端部、前記第 1 端部と前記第 2 端部との間に延在する縦軸、及び前記縦軸に沿って延在する中央孔を有する本体を有することであって、前記第 1 端部は、前記縦軸に斜めの方向に延在する斜面を含むこと；並びに前記チャンバーに配置され、かつ第 1 端部及び第 2 端部を有する第 2 電極であって、前記第 2 電極の第 2 端部は、間に間隙を形成するように前記斜面近くに配置されること、この場合、前記第 1 電極及び前記第 2 電極の少なくとも 1 個はカーボンを含むこと、を特徴とするカーボンナノ構造体の製造用のアーク電極組立体。

【請求項 15】 前記中央孔が、底面を形成するように前記斜面から前記第 1 電極本体へ延在する貫通していない孔であることを特徴とする、請求項 14 に記載のアーク電極組立体。

【請求項 16】 好ましくない副生堆積物は前記中央孔の中に収集されるように前記第 1 電極が前記第 2 電極の下に配置されることを特徴とする、請求項 15 に記載のアーク電極組立体。

【請求項 17】 前記斜面が中に形成された複数の穴を有することを特徴とする、請求項 14 に記載のアーク電極組立体。

【請求項 18】 前記複数の穴がいろいろな深さの穴を含むことを特徴とする、請求項 17 に記載のアーク電極組立体。

【請求項 19】 前記第 1 電極本体は管状であって、前記チャンバーから前記中央孔を通過して物質を圧送するように前記アーク電極組立体は更に前記中央孔に連通す

るポンプを含むように前記中央孔が前記第1電極を完全に貫通して延在することを特徴とする、請求項14に記載のアーケ電極組立体。

【請求項20】 更に前記中央孔を通過して圧送される物質を受け容れるように前記ポンプと前記中央孔の間に配置された収集箱を含むことを特徴とする、請求項19に記載のアーケ電極組立体。

【請求項21】 更に、少なくとも2個の前記第2電極を含むことを特徴とする、請求項14に記載のアーケ電極組立体。

【請求項22】 更に前記第2電極が互いに可動であり、かつ前記第1電極に対して可動であるように前記第2電極の第1端部及び前記チャンパーに接続された調節機構を含むことを特徴とする、請求項21に記載のアーケ電極組立体。

【請求項23】 前記第1電極が前記少なくとも2個の第2電極の下に配置されること；前記第1電極がアノードとして作用するように前記第1電極が陽電位に接続され、前記少なくとも2個の第2電極はカソードとして作用するように前記少なくとも2個の第2電極が、陰である陰電位に接続されること；及び前記第1電極本体が、その中に中央孔を有し、かつ縦軸を定義し、前記第1電極本体が管状であるように前記中央孔は前記第1電極を完全に貫通して延在することによりガスが前記中央孔を通り前記チャンパーに導入されることが出来ること、を特徴とする、請求項に記載21のアーケ電極組立体。

【請求項24】 前記少なくとも2個の第2電極が互いに離れて間隔を置いて配置され、かつ集束型アーケを発生するように第1電極から間隔を置いて離れて配置されることを特徴とする、請求項21に記載のアーケ電極組立体。

【請求項25】 前記第1電極が、前記少なくとも2個の第2電極に関して回転するように取り付けられることを特徴とする、請求項21に記載のアーケ電極組立体。

【請求項26】 前記第1電極がグラファイトで作られ、及び前記少なくとも2個の第2電極がカーボンで作られることを特徴とする、請求項21に記載のアーケ電極組立体。

【請求項27】 壁を有するチャンパーの中に第1グラファイト電極及び少なくとも2個のカーボン第2電極を配置して前記少なくとも2個の第2電極は間隔を挟んで前記第1電極に対向すること；前記チャンパーの内部に雰囲気を提供することであって、前記雰囲気は不活性ガス及び第1圧力を含むこと；並びに前記少なくとも2個の第2電極の各々と前記第1電極との間でアーケを形成してカーボンナノ構造体を製造するように前記少なくとも2個の第2電極と前記第1電極の両端に電圧を印加すること、

その場合、前記電圧が印加された時に前記アーケが組み合わさるように配置の前記段階が前記の少なくとも2個

の第2電極を配置すること、を特徴とするカーボンナノ構造体の製造方法。

【請求項28】 前記第1電極が貫通孔を含み、前記方法が更に：前記ガス及びカーボンナノ構造体を前記チャンパーから吸引するように前記孔を通る吸引部を提供することにより、前記カーボンナノ構造体が前記第1電極からの熱によりアニーリングされること；前記チャンパーを前記第1圧力で維持するように前記チャンパーにガスを供給することを特徴とする、請求項27に記載のカーボンナノ構造体の製造方法。

【請求項29】 吸引部を備える前記段階が、前記壁に多量の煤を生成しない量の吸引部を備えることを含むことを特徴とする、請求項28に記載のカーボンナノ構造体の製造方法。

【請求項30】 前記第1電極が貫通孔を含み、前記方法が更に：有機蒸気及び触媒は前記孔を通過し、かつ前記アーケを通過することにより前記有機蒸気及び触媒を前記チャンパーに導入することであって、前記触媒及び有機蒸気は前記アーケを通過する前に前記触媒及び有機蒸気は前記第1電極により加熱されることを特徴とする、請求項27に記載のカーボンナノ構造体の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】背景

本発明は、カーボンナノ構造体の合成用のアーケ電極構造体、及び前記電極構造体を用いてカーボンナノ構造体を製造する方法に関する。更に詳しくは、本発明は、カーボン含有電極の消費、又は化学気相成長(CVD)プロセスによってカーボンナノ構造体を合成するためのアーケプラズマ放電を発生する電極の配列体に関する。生成出来るカーボンナノ構造体には、単層ナノチューブ(SWNT)、多層ナノチューブ(MWNT)、フラーレン、金属内包フラーレン、カーボンナノファイバー、及びその他のカーボン含有ナノ物質が挙げられる。

【0002】

【従来の技術】当業界では、カーボンナノ構造体は、1個のアノードと1個のカソードの間のアーケ放電によって作られる。例えば、1999年9月28日に公開された日本国特開平11-263609号；D. T. Colbert等による“Growth and Sintering of Fullerene Nanotubes”、Science Magazine、第266号(1994年11月8日)；Lowell D. Lamb等の“Fullerene Production”、Journal of Phys. Chem. Solids、第54巻、第12号、1635-143頁、Elsevier Science社、英国、1993年；及び米国特許第6,063,243号を参照されたい。1個のアノードと1個のカソードだけを使用するので、ア

ークプラズマ領域は限定される。更に、両電極は、互いに対向する平坦な表面を含む。平坦な電極構造だけで互いに対向するので、もし不可能でないにしても、アークプラズマの方向及び領域を制御することは難しい。従って、生成する最終のカーボンナノ構造体を制御することは難しい。更に、アークプラズマ領域以外の領域は急速に温度が下がる。アークプラズマの領域のサイズは限定されること、及びアークプラズマ領域以外の温度は低いので、反応種は急冷されて、熱間アニーリングは起こらない。反応種のこのような急冷によってアモルファスカ

ーボンやその他の好ましくない種が多量に生成するので、カーボンナノ構造体の収量は低下することになる。従って、このような装置と方法では短いSWNTだけが生成することがある。

【0003】当業界のアノードは、一般的に、内部に触媒が混合されたカーボンロッドである。低い沸点又は昇華点を有する触媒は、高温の電極から簡単に離脱してしまうので広く利用されない。

【0004】煤の発生過程では、煤はアーク電極チャンパーの内壁に概ね堆積するのでこれを採取しなければならない。Lamb等の“Fullene Production”に記載されているように、煤の回収は現実的に健康上の危険が伴う。従って、一般的に、時間と出費が高むことを意味する煤の採取は慎重に行なわれなければならない。従って、煤の採取は特に大きいチャンパーの中では厄介な仕事である。

【0005】最後に、従来からのアークCVD装置では有機蒸気が電極の中心から外れた入口から導入される。即ち、当業界の構造体では、ガス状反応種はアークプラズマに放電領域側に導入される。Ando等の“Mas

【0007】

【発明が解決しようとする課題】本発明の1つの目的は、先行技術の前述の課題を解決することである。更に詳しくは、本発明の目的は、アーク電極構造体及び関連の装置であり、それによって先行技術の前述の課題が解決される。本発明のもう1つの目的は、カーボンナノ構造体、そして特にSWNTを効率よく製造するアーク電極構造体であり、その構造体によってSWNTの収量は増大する。

10 【0008】

【課題を解決するための手段】最終生成物を制御出来るように、本発明は、アークプラズマの方向及び領域を調節することが出来る。即ち、本発明は、斜面を有する環状電極を含むので、アークプラズマの方向及び領域を容易に調節出来る。加えて、本電極は、斜面を含むので自動的に清掃される。即ち、斜面でなければ平坦な電極表面上に集ってしまう堆積物は、本発明の電極の斜面を滑り落ちるので、電極表面はきれいになる。更に、この電極の斜面は、触媒が沸点又は昇華点に達しても触媒を保持するように中に複数の穴を含んでいる。アーク放電の期間中は、触媒がアークプラズマ領域全体に連続的にかつ均一に分布されるようにこれらの穴の深さはいろいろである。

【0009】電極の片方の斜面に加えて、本発明は、第1電極の斜面に対向して配置された複数の第2電極を含む。少なくとも2個の第2電極を備えることはアークプラズマの方向及び領域が調節性に役立つ。これらの複数のアークが組み合わさって、より長い反応時間となり、大きくて、より高温のアークプラズマ領域を発生するようにこれらの第2電極は配置される。従って、反応時間が長くなると、長手のSWNTとなり、その収量は増える。

【0010】本発明の更なる目的は、カーボンナノ構造体を容易に収集出来て、しかも熱間アニーリング出来る電極構造体である。第1電極の中には中央貫通孔がある。この貫通孔は、更に収集箱とポンプに接続している出口管に接続している。煤が電極チャンパーの内壁に堆積しないようにポンプが中央貫通孔から煤を引いていて、収集箱に入れる。このようにして煤は簡単に安全にしかも迅速に収集される。更に、煤が高温電極の中央貫通孔から吸引される時、この煤は熱間アニーリングされることによりカーボンナノ構造体が完成される。即ち、煤が中央貫通孔に沿って移動する時、電極からの熱によって長手のSWNTを生成する長い反応時間が得られ、カーボンナノ構造体上のダングリングボンドが消滅する。

【0011】これとは別に、第1電極の中央貫通孔を使って電極チャンパーから煤を取り出す代わりに、中央貫通孔を使うと有機蒸気、ガス(不活性ガスを含めて)、及び触媒を電極チャンパーへ導入することが出来る。即

ち、本発明の装置を使うと、離れて対向しているカーボン電極からではなく、ガス状原料からCVDによってカーボンナノ構造体を作ることが出来る。従って、アークプラズマ領域に導入されるガスを選ぶことにより、カーボンナノ構造体のタイプとサイズを容易に制御出来る。ガスは電極の一方にある中央貫通孔を通して導入されるので、電極がアークプラズマ領域に達する前に予熱されることによりカーボンナノ構造体の収量は増大する。同様に、電極を通過するガスによって電極は冷却され、それによって安全性が高まり、電極の使用寿命は延びる。更に、ガスが電極の中心を通過して導入され、アークプラズマ領域が中央貫通孔の上部を占めるので、ガスはアークプラズマ領域を通過しなければならず、しかもアークプラズマの比較的大きい部分が使用される。有機蒸気をこのように導入することにより、未使用ガスの量は減り、更に、カーボンナノ構造体の製造コストは下る。

【0012】本発明の前記及びその他の目的並びに長所は、付図を参照しながら本発明の詳細な、好ましい実施態様を説明することにより明らかになるだろう、その場合、同じ参照番号は図面全体を通して同じ部品又は対応する部品を表す。

【0013】

【発明の実施の形態】(第1実施態様)本発明の第1実施態様を図1-3に示している。カーボンナノ構造体の製造装置には、チャンバー1、第1電極20、1個以上の第2電極40、及び調節機構50が含まれる。

【0014】チャンバー1はチャンバー内部5と境を接する壁2を含む。壁2は、冷却流体が壁を貫通出来る構造になっている。チャンバー内部5を冷却するように、冷却流体は、冷却流体入口部4から導入して、冷却流体出口部8から出る。更に、チャンバー内部5をガス雰囲気にすることが出来るように、チャンバー1には入口6と出口10がある。このガス雰囲気は、例えば、ヘリウム又はアルゴンのようないずれの不活性ガスも入れることが出来る。更に、ガス雰囲気は水素、又は水素と不活性ガスの混合物を含んでもよく、約300トル(Torr)ないし約760トルが一般的である。ガス雰囲気の具体的な組成は、どんなカーボンナノ構造体を製造したいかによって決まる。更に、チャンバー内部5の中に配置されている第1電極20及び1個以上の第2電極40を、使用者が観察するためにチャンバー1には更に覗き窓12が含まれる。

【0015】第1電極20は、第1端部21、第2端部33及びそれらの両端部間に縦軸31に沿って延在する本体27を含む。この本体27には、内部に中央が貫通していない孔29が配置されている。即ち、中央孔29は、第1端部21から第2端部33まで第1電極20を完全に突き抜けて延在している訳ではない。第1電極20は電源(voltage potential)に接続されていて、第2端部33に取り付けられたコネクタ

14によってチャンバー内部5に取り付けられている。【0016】第1端部21は中央孔29の方へ傾斜している斜面23を含む。斜面23は縦軸31に対して角度 θ で配置されている。図3を参照されたい。角度 θ は約 20° から約 60° 未満が可能であるが、約 30° と約 45° の間が好ましい。斜面23が第1電極20の清浄化に影響を及ぼし、第1電極20と1個以上の第2電極40との間のアークの形状にも影響を及ぼすようにこの角度 θ は選ばれる。

【0017】斜面23は、カーボンナノ構造体の製造中は第1電極20の第1端部21を清掃するのに役立つ。即ち、電圧が第1電極20と、1個以上の第2電極40との両端に印加されると、堆積物が第1端部21上に生成し易い。しかしながら、斜面23によってこの堆積物は第1端部21から滑り落ちて中央孔29の中に入る。角度 θ が大きくなるにつれて、斜面23は水平になり堆積物は斜面から滑り落ちなくなる。

【0018】加えて、斜面23は、第1電極20と第2電極40によって発生するアークの形状を形成するのに役立つ。必要に応じて、2個以上の第2電極40が使用される場合、最終生成物を制御出来るように、斜面23はアークプラズマの方向及び領域を調節出来る。即ち、角度 θ が小さくなるにつれて、各々第2電極40のアークプラズマ領域は第1端部21の中心の方へ向き、そしてアークプラズマ領域は第2電極40の端部の上部にあるのが少なくなる、即ち、第1電極20の斜面23に沿って放射状に外向かうのは少なくなる。そして2個以上の第2電極40からのアークプラズマ領域が第1電極20の中心へ向くと、アークは結合し、それによって反応時間を延ばす、より大きく、より高温のアークプラズマ領域を生成する。従って、カーボンナノ構造体の収量とサイズは増大する。角度 θ が大きくなるにつれて、第1電極20の第1端部21が水平になり、従来型のアーク電極構造体に近づくにつれて(即ち、 $\theta=90^\circ$ では)アークプラズマの方向及び領域を制御することは不可能ではないにしても、難しい。

【0019】図2に示すように、斜面23は表面に複数の穴25を配置している。穴25は、カーボンナノ構造体の製造過程で使用される触媒を保持する。触媒は、穴25の中に保持されるので、異なる放電に対して触媒を変更することが容易である。即ち、第1電極20は放電過程では消費されないで、穴25はこの形状と、触媒保持能力を維持する。従って、穴25は中を掃除して新規の触媒を充填するだけでよい。

【0020】各々の穴25は、深さは約2mmから約10mmであるが、約5mmが好ましい。穴25が深過ぎると、触媒は溶融して穴の底部に沈降して従って第1電極20の斜面23での反応には使用出来ない。従って、触媒が溶融又は昇華する時でも触媒は穴25中に保持されて、触媒が使用出来るように斜面23から充分近い所

にあるように深さは選ばれる。

【0021】更に、第1電極の第1端部21の直径が約20cmで中央孔29の直径が約4cmの場合、各々の穴25の直径は約3mmから約10mmである。しかしながら、各々の穴25の直径は約4mmから約8mmの範囲が好ましい。各々の穴25の直径が過大になると、充分な数の穴が斜面23上に生成出来ないで、充分な量の触媒が反応に利用出来ない。中央孔29の直径が増大するか、又は第1電極の第1端部21の直径が縮小すると同じようなことが当てはまるので、これらは各々約

0cmから約6cm、そして約5cmから約30cmの範囲が可能である。また、穴25の直径が過大であると、第1電極20の表面積との関係で所望される分布の穴25を得ることは難しい。

【0022】図2は同じ直径を有するような穴25を示しているが、そのようなことをする必要はない。更に、穴25が各々同じ深さである必要はない。実際には、第2電極40が消費されるまでアーク放電の開始から絶えず触媒を供給するように、穴25がいろいろな深さを有することが好ましい。即ち、触媒が穴25から急速に蒸発するような浅い穴25もあり、一方、触媒が比較的ゆっくりとしかも長時間かけて蒸発するような深い穴25もある。重要なことは、第2電極40が消費されるまでアーク放電の最初から蒸発によってアークプラズマ領域に触媒を絶えず供給するように、穴25が斜面23の全面にわたって分布されることである。存在する穴25が多ければ多いほど、アーク放電過程で前記のような連続的に、均一に触媒を供給することがそれだけ容易に行なわれる。

【0023】第1電極20は断面が円形で示されているけれども、例えば、楕円形、長方形、正方形、五角形、六角形、八角形等のようないずれのその他の断面形も使用出来る。更に、本実施態様では、第1電極20はグラファイト(作業中の約4000℃となるアークプラズマ温度に耐えるために)で作られ、陰極電位に接続されてカソードとなる。

【0024】更に、第1電極20はアーク放電中に回転させることが可能である。第1電極20を回転させることにより、第2電極40が消費される間中は連続的に触媒を供給し易くなり、しかもアークプラズマ領域に均一に触媒を供給することが容易になる。即ち、第1電極20を回転させることにより穴25(触媒を保持している)は、アークプラズマ領域を通過するのでアークプラズマ領域の外側になることがある穴25のなかにはアークプラズマ領域に出たり入ったりするものもある。従って、触媒はアークプラズマ領域全体に連続的にしかも比較的均等に分布される。

【0025】第1電極20の斜面23に対向するように1個以上の第2電極40がチャンバー1に配置される。第2電極40がもっと多数使用されると更に大きくかつ

更に高温のアークプラズマ領域を生成出来る。更に、アークの集束、又は重複によってアークプラズマ領域は温度的には、更に均一になる。各第2電極40には第1端部41及び第2端部42が含まれる。第1端部41は調節機構50に接続されている、一方、各々の第2端部と斜面23の間に間隙47を形成するように第2端部42は斜面23と向き合っている。間隙47は、斜面23に垂直な線に沿って第2端部42の中心から斜面23まで測定される、と言うのは第2電極40はアーク放電過程で急速に消費されて、斜面23の斜面に概ね平行な斜面となるからである。本実施態様では、第2電極は、陽極電位に、即ちアノードに接続されている。更に、本実施例では、触媒は第1電極20の穴25によって供給されるので、各々第2電極は純粋なカーボンで作ることが出来る。しかも純粋なカーボンロッドは中に触媒を含むカーボンロッドより高価ではない。勿論、触媒が第1電極20の穴25によって供給されたととしても1個以上の第2電極40は中に触媒を含むことが出来る。

【0026】調節機構50は、第2電極40をチャンバー1及び電源に接続する。この調節機構50はねじ付きの植込みボルト54及びナット56を含む。

【0027】第2電極40が互いに調節出来るように極板52は第2電極40に取り付けられている。即ち、2個の第2電極40が使用される場合、これらの電極は間隔45によって調節出来るように離されている。第2電極40は矢印Bの方向に互いに近付いたり離れたり出来るように第2電極40は極板52に取り付けられるので、間隔45は調節可能である。本実施態様では、2個の第2電極40だけしか示されていないけれども、任意の数の第2電極40を使用出来る。第2電極40の個数を増やすと、アークプラズマ領域の考えられるサイズが大きくなり、温度を高め、従って製造出来るカーボンナノ構造体の量が増える。3個以上の第2電極40を使用する場合、第2電極40の各々の間隔45は調節可能のように、極板52は、第2電極40の各々が残りの第2電極40に対して移動出来る取り付け構造体を含む。本発明の好ましい実施態様では、間隔45は、アークの所望の組み合わせとなる約8cmに設定される。多数の第2電極40がある場合、第2電極40は間隔45の長さと同じ長さの直径を有する円の上に固定することが出来る。

【0028】加えて、ねじ付き植込みボルト54は極板52に取り付けられてチャンバー1の壁2を貫通して延在する。ナット56はねじ付き植込みボルト54と噛み合わされて極板52と、従ってチャンバー内部5の中にある第2電極40に取り付けられる。ナット56とねじ付き植込みボルト54が第2電極40を矢印Aの方向へ動かすので、間隙47の隙間距離が調節される。ナット56は手動でも、或いは自動制御装置(示されていない)によっても調節出来るので、第1電極20に対して第2

電極40の位置が決まる。本発明の好ましい実施態様では、間隙47の間隔は約2mmから約5mm、好ましくは約2mmから約3mmの範囲で設定される。間隙47が大きすぎるとアークが発生しない、一方、間隙47が小さすぎると極めて小さいアークプラズマ領域が発生する。再び書くが、アークプラズマ領域のサイズが大きくなると反応時間は長くなり、その結果、カーボンナノ構造体が大きくなるばかりでなくこのカーボンナノ構造体の収量も高くなる。

【0029】調節機構の構造は本発明には重要ではなく、第2電極40を電源に接続出来るいずれの機構でもよいばかりでなく第2電極40の間の距離45を調節出来、そして間隙47を調節出来るいずれの機構でもよい。

【0030】本発明の実施態様を使ってSWNTを製造する好ましい操作法を下記で説明する。

【0031】グラファイトで作られ、斜面23が縦軸31に対して約30°の角度θをなす第1電極20を、直径約10mmの純粋なカーボンの第2電極40の下に配置すると、好ましくない堆積物が中央が貫通していない孔29の中に収集される。

【0032】斜面23にある穴25は、例えば、硫黄、リン、ニッケル、イットリウム、コバルト、又はそれらの混合物のような触媒で(通常は、斜面の頂部まで)充填されている。触媒のタイプは製造対象のカーボンナノ構造体のタイプによって決まる。例えば、触媒を変更することによって次の1種以上のカーボンナノ構造体を効率良く製造出来る：即ち、単層ナノチューブ(SWNT)；多層ナノチューブ(MWNT)；フラーレン；金属内包フラーレン、カーボンナノファイバー；及びその他のナノ構造体。SWNTの製造には、硫黄触媒によって比較的大きい直径のチューブが製造される。本実施態様の重要な特徴は、グラファイトの第1電極20が斜面23に穴25を含むのでこの電極20が触媒を容易にアークプラズマ領域へ供給することである。即ち、この触媒は容易に穴25へ導入され、アークプラズマ領域へ提供されるのに都合がよい。更に、第1電極20は消費されない、穴25はアーク放電中でもその形状を保持している。従って、この触媒が沸点又は昇華点に達した後でさえ、この穴25はこの触媒を保持している；触媒は第1電極20から流れ出ることはない。

【0033】次に、このチャンバー内部5を、He又はArのような不活性ガス、H₂のようなガス又はそれらの混合物を含むガス雰囲気で充填させる。いずれの不活性ガスを使用してもよいけれども、H₂を含む雰囲気では比較長手のSWNTが生成する傾向があり、一方、Heを含む雰囲気では比較短手のSWNTを生成する傾向がある(フラーレンを作るためにHe雰囲気を使用しなければならないことに注目されたい)。このガス雰囲気がチャンバー内部5で形成されると、約500 torrの

H₂の静的ガス雰囲気を維持するようにチャンバー入口6とチャンバー出口10に付いているバルブが閉じられる。

【0034】第2電極40は互いに約8cm離されていて、大きいアークプラズマ領域を有する結合アークを発生する。次いで、第1電極20と第2電極40は約2mmないし約3mmの間隙47を挟んで互に向き合う。

【0035】更に、第1電極20は陰極電位に接続されてカソードとして作用する、一方、第2電極40は陽極電位に接続されてアノードとして作用する。次に、約30ないし約35ボルトの電圧、約200アンペアの電流の直流(DC)が第1電極20と第2電極40に印加されると、アーク放電によってアークプラズマ領域が発生する。このアーク放電が約30分ないし約1時間行なわれるとアノードが消費される。第2電極40が消費されにつれて調節機構50が作動して、電圧を約30ないし約35ボルトで維持するように第2電極40を第1電極20の方へ移動させる。第2電極40の消費によって生成する煤は、所望のカーボンナノ構造体を含み、チャンバー1の内壁3に堆積する。

【0036】前記条件のもとで約0.3ないし約1g/分の煤生成速度が得られるが、その場合、SWNTの収量は50重量%超である。生成したSWNTは、一般的に、直径が約1.2ないし約1.8ナノメートルであり、長さは約100マイクロメートルである。

【0037】本装置の前記操作ではDC電圧を説明したけれども、本発明の装置を使って交流(AC)も使用出来る。更に、約200アンペアの電流が好ましいけれども、約100ないし約300アンペアの電流も使用出来る。

【0038】(第2実施態様)本発明の第2実施態様を図4に示している。第1実施態様に関して示し、説明した要素と類似の要素は同様な参考番号で示している、そのような要素の説明は省略する。

【0039】本発明の本実施態様では、チャンバー1は出口管16、収集箱18及びポンプ19を含む。入口管16は第1電極20及び収集箱18に接続されている。次に、収集箱18はポンプ19に接続されている。更に、第1電極20は第1電極20を完全に貫通して、出口管16に接続されている中央孔29を含む。

【0040】従って、第1電極20と第2電極40との間のアーク放電によって生成される煤は、ポンプ19を運転してチャンバー内部5から収集箱18へ移送させて容易に収集箱18に収集出来るように、チャンバー内部5の内部はポンプに連通している。チャンバー内部5からの流量は、大量の煤が内壁面3に集まらないような充分な値に設定される。ポンプ19がチャンバー内部5から煤とガスを吸引する時、チャンバー入口6は、チャンバー内部5の圧力を維持するように対応するガス量をチャンバー内部5へ入れることが出来る。

【0041】従って、本実施態様は煤を容易に収集すると言う長所を有する。この煤は、副生物と所望のカーボンナノ構造体を含んでいるが、チャンバー1の内壁面3に堆積しないで収集箱18の中に収集される。即ち、チャンバー1の内壁面3にはそれほど多量の煤は生成しないので、時間がかかりコストが高み、そして多分不安全な煤の収集作業を行なう必要はない。

【0042】本実施態様の更なる長所は、カーボンナノ構造体が煤と一緒に第1電極20の中央孔29'を通る時に、この構造体が熱間アニーリング(heat annealing)されることである。第1電極20はアーク放電により加熱される。第1電極の第1端部21の表面は約4000℃に達し、一方、本体27は第1端部21から離れて延在しているので冷めている。従って中央孔29'に沿って温度勾配が形成される。煤がこのような温度勾配の中を通る間に、煤の中にあるカーボンナノ構造体は長時間反応させられて更に完全なものとなる。即ち、カーボンナノ構造体が第1電極20の中央孔29'の中を通される時、この構造体が熱間アニーリングされるとダングリングボンドが消滅する。本発明の本実施態様によって生じる反応時間が長いと、ナノチューブは、より長くもなり、収量も向上することが可能である。メタロフラーレン(metallofulleren)の製造では、このような長い反応時間が特に有利である。本発明の好ましい実施態様では、中央孔29'が約30cmであるとカーボンナノ構造体の熱間アニーリングが可能である。

【0043】図4は、第1電極20上に生成した堆積物がチャンバー内部5の底部へ滑り落ちるように第2電極40上に配置された第1電極20を示している。このような形態では、触媒(約7.5ないし約20重量%の量)の第2電極40の中に含まれる。しかし、第1電極20は第2電極40の下に配置されて、従って第1実施態様のように触媒を供給するために作動することが出来る。第1電極20を使って触媒を供給出来る長所は、第2電極40の下に配置された第1電極20で発生するように所望のカーボンナノ構造体と一緒に好ましくない電極堆積物を収集すると言う短所より勝っている。

【0044】(第3実施態様) 本発明の第3実施態様を図5に示している。第1及び第2実施態様に関連して示しかつ説明した要素と同類の要素は同様な番号で示している。そのような要素の説明は省略する。しかしながら、本発明の実施態様では、カーボンナノ構造体はガス状態で導入されるカーボン成分から堆積される。即ち、本実施態様はCVDプロセスである。

【0045】本実施態様の場合、チャンバー1は、入口管16'、及びチャンバー出口10'を有する；チャンバー入口6は必須ではなく、必要に応じて加えることが出来る。即ち、入口管16'は、第1電極20の中央孔29'に接続されてアークプラズマ領域及びチャンバー

内部5にガスを供給する。アーク放電中はチャンバー内部5の圧力を一定に維持するように、等価の量のガスをチャンバー出口10'を通してチャンバー1から放出させる。

【0046】カーボンナノ構造体が生成する、即ち堆積することは、中央孔29'を通して導入されるガスの成分による。即ち、カーボンナノ構造体用の触媒と原料を含むガスは、中央貫通孔29'を通りアークプラズマ領域に供給される。このアークプラズマ領域では、カーボンナノ構造体を生成する反応が起こるほど充分なエネルギーがこのガスに加えられる。しかしながら、ガスがアークプラズマ領域に達する前に、ガスは、アーク放電によって加熱された第1電極20の中央貫通孔29'を通過する。従って、ガスはアークプラズマ領域に達する前に予熱される。ガスが予熱されるのでカーボンナノ構造体の更に良好な収量が達成される。

【0047】ガスがカーボンナノ構造体製造用の触媒及び原料を含むので、カーボンナノ構造体のサイズ及び生成量を制御することは容易である。即ち、導入されるガスの流量及び濃度が、生成されるカーボンナノ構造体のタイプ及び量を制御する。例えば、このガスは不活性ガス及び触媒と混合された有機蒸気を含むことが出来る。そのような配合物では、有機蒸気には、 CH_4 、 $\text{CH}_2=\text{CH}_2$ 、 $\text{CH}\equiv\text{CH}$ 、 $\text{CH}_3\text{CH}_2\text{CH}_3$ のいずれかの1種以上を挙げることが出来る；一方、触媒には、単独又は組み合わせて使用するには、S、チオールチオフエン、 $\text{C}_{10}\text{H}_{10}\text{Fe}$ 、 $\text{C}_{10}\text{H}_{10}\text{Ni}$ 又は $\text{C}_{10}\text{H}_{10}\text{Co}$ が挙げることが出来る。加えて、本実施態様では、水素が触媒の表面をきれいにすることにより生成するカーボンナノ構造体の収量が上がるので、チャンバー内部5は H_2 を含む雰囲気である。水素も、有機蒸気及び触媒と一緒に導入出来る。更に、内側チャンバーは約1気圧の圧力である。

【0048】本実施態様では、触媒はガス状態で導入されるけれども、前記の実施態様のように触媒も第1電極20の中にも、第2電極40の中にも入れることが出来る。即ち、触媒は次の3つの方法のうちのいずれの1種以上の方法でアークプラズマ領域に加えることが出来る：即ち、a) 入口管16'を通して導入されるガスによる；b) 第1電極20の中の穴25による；又はc) 第2電極40による。

【0049】更に、本発明の構造体によってカーボンナノ構造体製造の効率が向上する。前述のように、第1電極20の斜面23はアークプラズマの方向及び領域を制御することが出来る。従って、適切な角度の θ 、第2電極間隔45、及び電極間隔47を選ぶことにより、中央孔29'の上で広い範囲にわたってアークプラズマ領域を均一に発生させることが出来る。従って、ガスは第1電極20の中心を通して導入され、そしてアークプラズマ領域は中央孔29'全体にわたって均一に配置される

ので、アークプラズマ領域全体を更に完全に利用することによりガスは均等に消費される。即ち、ガスはアークプラズマ領域を通らなければならないので、中央孔29'を通して導入されるガスが消費されずに残るのは極めて僅かである。更に、ガスは4000℃の温度(一般的にCVD工程で使用される温度よりも遥かに高い)を有するアークプラズマ領域を通るので、本発明は、典型的なCVD工程の効率よりも遥かに高い効率を達成する。従って、本発明の実施態様によってカーボンナノ構造体が効率よく製造出来る。

【0050】斜面23は、アークプラズマ領域を制御することが出来るので、第2電極40を1個だけ使用することは出来るが、そのようなことは好ましいことではない。即ち、前記のようなアークプラズマ領域が中央開口部29'を覆って配置されるように1個の第2電極40からのアークプラズマの方向及び領域を制御することが出来る。しかしながら、そのようなアークプラズマ領域は2個以上の第2電極40で得られる領域ほど大きくはなく、従って、2個以上の第2電極40の場合のようにカーボンナノ構造体の大きい製造能力、収量及び品質は得られない。

【0051】本実施態様では、カーボンナノ構造体の製造の主な資源は、ガスの諸成分からこの構造体を形成することによる一尤も、第2電極40の消費によって製造される部分もある。従って、一組の電極40を用いて製造出来るカーボンナノ構造体の量を増やすアーク放電時間を延ばすために、第2電極40の消費を遅くすることが望ましい。アーク放電の期間を延ばすために、第1電極20はアノードとして作用するように陽極電源に接続され、一方、第2電極40はカソードとして作用するように陰極電源に接続される。即ち、第2電極40の消費を遅くするために電源は第1及び第2実施態様で利用した装置から変更する。

【0052】第1実施態様と類似の本実施態様では、カーボンナノ構造体を含む煤はチャンバー1の内壁面に堆積する。

【0053】特許請求の範囲で定義される本発明の精神と範囲を逸脱することなく、本発明のアーク電極組立体に対していろいろな修正をすることが可能であると考えられる。

【図面の簡単な説明】

【図1】カーボンナノ構造体を製造する場合の、本発明の第1実施態様によるチャンバー及びアーク電極の略図である。

【図2】図1のI I - I Iの線に沿って切り取った、ア

ーク電極の部分断面略図である。

【図3】図1に示すアーク電極の1個の側面略図である。

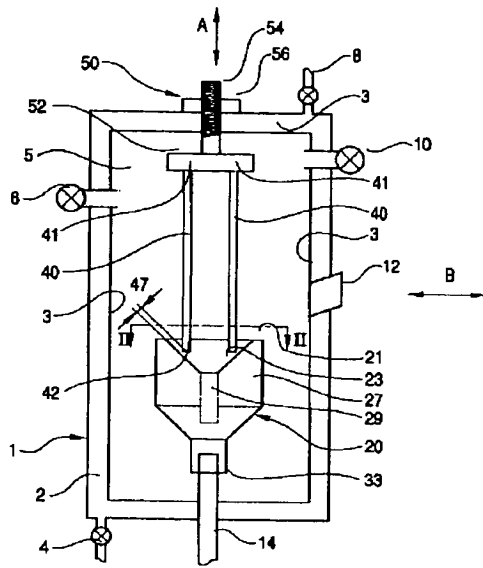
【図4】カーボンナノ構造体を製造する場合の、本発明の第2実施態様によるチャンバー及びアーク電極の略図である。

【図5】カーボンナノ構造体を製造する場合の、本発明の第3実施態様によるチャンバー及びアーク電極の略図である。

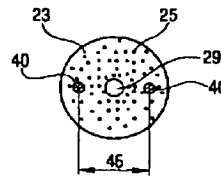
10 【符号の説明】

- 1 チャンバー
- 2 チャンバー壁
- 3 内壁面
- 4 冷却流体入口
- 5 チャンバー内部
- 6 チャンバー入口
- 8 冷却流体出口
- 10 チャンバー出口
- 12 覗き窓
- 14 コネクター
- 16 第1電極用の出口管
- 16' 第1電極用の入口管
- 18 収集箱
- 19 ポンプ
- 20 第1グラファイト電極
- 21 第1電極の第1端部
- 23 斜面
- 25 第1電極の斜面にある穴
- 27 第1電極の本体
- 29 中央が貫通していない孔
- 29' 中央貫通孔
- 31 第1電極の縦軸
- 33 第1電極の第2端部
- 40 第2電極(類)
- 41 第2電極(類)の第1端部
- 42 第2電極(類)の第2端部
- 45 第2電極類の間隔
- 47 第1電極と第2電極との間隙
- 50 調節機構
- 52 極板
- 54 ねじ付き植込みボルト
- 56 ナット
- A 水平方向の調節
- B 垂直方向の調節

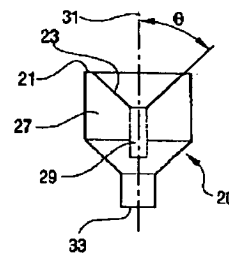
【図1】



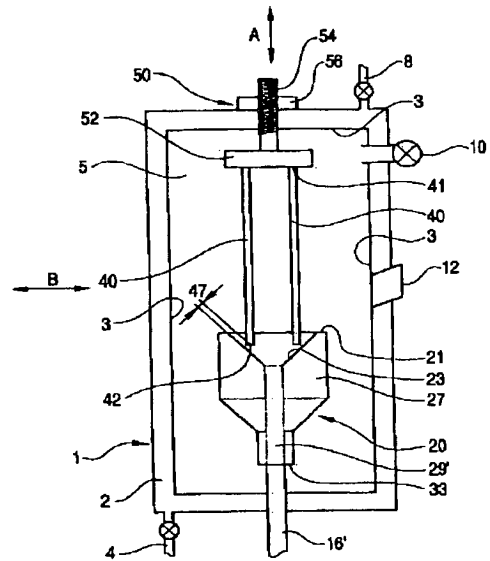
【図2】



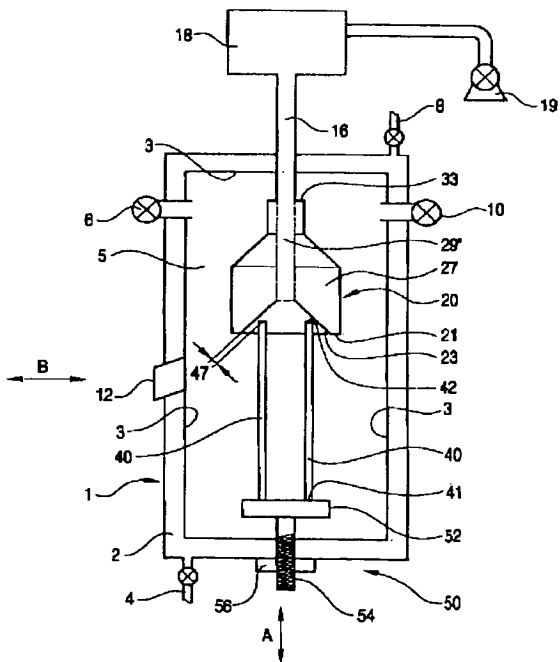
【図3】



【図5】



【図4】



フロントページの続き

(72)発明者 山田 淳夫
東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニ
ー株式会社内

(72)発明者 白石 誠司
東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニ
ー株式会社内
Fターム(参考) 4G046 CA01 CB01 CC06 CC08 CC09

【外国語明細書】

1. Title of the Invention

**ARC ELECTRODES FOR SYNTHESIS OF CARBON
NANOSTRUCTURES**

2. Claims

1. An arc electrode assembly, for producing carbon nanostructures, comprising:

a chamber;

a first electrode having a first end, a second end, and a body extending between said first end and said second end, said first electrode being disposed in said chamber and being connected to one of a positive potential and a negative potential; and

at least two second electrodes each having a first end and a second end, said at least two second electrodes being disposed in said chamber and being connected to a second potential which is the other of said positive potential and said negative potential, wherein said second ends of said at least two second electrodes are disposed opposite said first end of said first electrode so as to form a gap between each of said second electrodes and said first electrode,

wherein at least one of said first electrode and said at least two second electrodes contains carbon.

2. The arc electrode assembly according to claim 1, wherein said first-electrode body has a central bore therein and defines a longitudinal axis, further wherein said first-electrode first end includes a sloped surface which extends in a direction that is oblique to said longitudinal axis, further wherein said second ends of said at least two second electrodes are disposed opposite said sloped surface so as to form said gap.

3. The arc electrode assembly according to claim 2, wherein said central bore is a blind bore extending from said sloped surface into said first-electrode body so as to form a bottom surface.

4. The arc electrode assembly according to claim 3, wherein said first electrode is disposed below said at least two second electrodes so that unwanted byproducts are collected in said central bore.

5. The arc electrode assembly according to claim 2, wherein said sloped surface has a plurality of holes formed therein.

6. The arc electrode assembly according to claim 5, wherein said plurality of holes includes holes of different depths.

7. The arc electrode assembly according to claim 2, wherein said central bore extends entirely through said first electrode so that said first-electrode body is tubular, said arc electrode assembly further comprising a pump communicating with said central bore so as to pump material from said chamber through said central bore.

8. The arc electrode assembly according to claim 7, further comprising a collection box disposed between said pump and said central bore so as to receive material pumped through said central bore.

9. The arc electrode assembly according to claim 1, further comprising an adjusting mechanism connected to said second-electrode first ends and to said chamber so that said second electrodes are movable with respect to one another and are movable with respect to the first electrode.

10. The arc electrode assembly according to claim 1, wherein:

said first electrode is disposed below said at least two second electrodes;

said first potential is positive so that said first electrode acts as an anode, and said second potential is negative so that said at least two second electrodes act as cathodes; and

said first-electrode body has a central bore therein and defines a longitudinal axis, said central bore extending entirely through said first electrode so that said first-electrode body is tubular, whereby gas can be introduced into said chamber through said central bore.

11. The arc electrode assembly according to claim 1, wherein said at least two second electrodes are spaced from one another, and are spaced from said first electrode so as to produce a converged arc.

12. The arc electrode assembly according to claim 1, wherein said first electrode is mounted for rotation with respect to said at least two second electrodes.

13. The arc electrode assembly according to claim 1, wherein said first electrode is made of graphite, and said at least two second electrodes are made of carbon.

14. An arc electrode assembly, for producing carbon nanostructures, comprising:

a chamber;

a first electrode disposed in said chamber, said first electrode having a first end, a second end, a longitudinal axis extending between said first end and said second, and a body having a central bore extending along said longitudinal axis, wherein said first end includes a sloped surface which extends in a direction oblique to said longitudinal axis; and

a second electrode disposed in said chamber and having a first end and a second end, said second-electrode second end being disposed adjacent to said sloped surface so as to form a gap therebetween,

wherein at least one of said first electrode and said second electrode contains carbon.

15. The arc electrode assembly according to claim 14, wherein said central bore is a blind bore extending from said sloped surface into said first-electrode body so as to form a bottom surface.

16. The arc electrode assembly according to claim 15, wherein said first electrode is disposed below said second electrode so that unwanted byproduct deposits are collected in said central bore.

17. The arc electrode assembly according to claim 14, wherein said sloped surface has a plurality of holes formed therein.

18. The arc electrode assembly according to claim 17, wherein said plurality of holes includes holes of different depths.

19. The arc electrode assembly according to claim 14, wherein said central bore extends entirely through said first electrode so that said first-electrode body is tubular, said arc electrode assembly further comprising a pump communicating with said central bore so as to pump material from said chamber through said central bore.

20. The arc electrode assembly according to claim 19, further comprising a collection box disposed between said pump and said central bore so as to receive material pumped through said central bore.

21. The arc electrode assembly according to 14, further comprising at least two of said second electrodes.

22. The arc electrode assembly according to claim 21, further comprising an adjusting mechanism connected to said second-electrode first ends and to said chamber so that said second electrodes are movable with respect to one another and are movable with respect to the first electrode.

23. The arc electrode assembly according to claim 21, wherein:
said first electrode is disposed below said at least two second electrodes;
said first electrode is connected to a positive potential so that said first electrode acts as an anode, and said at least two second electrodes are connected to a negative potential is negative so that said at least two second electrodes act as cathodes; and
said first-electrode body has a central bore therein and defines a longitudinal axis, said central bore extending entirely through said first electrode so that said first-electrode body is tubular, whereby gas can be introduced into said chamber through said central bore.
24. The arc electrode assembly according to claim 21, wherein said at least two second electrodes are spaced from one another, and are spaced from said first electrode so as to produce a converged arc.
25. The arc electrode assembly according to claim 21, wherein said first electrode is mounted for rotation with respect to said at least two second electrodes.
26. The arc electrode assembly according to claim 14, wherein said first electrode is made of graphite, and said second electrode is made of carbon.

27. A process for producing carbon nanostructures comprising:

disposing a first graphite electrode and at least two carbon second electrodes in a chamber, having walls, so that said at least two second electrodes are opposed to said first electrode across a gap;

providing an atmosphere inside the chamber, wherein said atmosphere includes an inert gas and a first pressure; and

providing a voltage across said at least two second electrodes and said first electrode so as to form an arc between each of said at least two second electrodes and said first electrode, to produce carbon nanostructures,

wherein said step of disposing includes disposing said at least two second electrodes so that when said voltage is provided, said arcs combine.

28. The method of producing carbon nanostructures as set forth in claim 27, wherein said first electrode includes a bore therethrough, and said method further comprises:

providing a suction through said bore so as to draw said gas and the carbon nanostructures out of said chamber, whereby the carbon nanostructures are annealed by heat from said first electrode;

providing a supply of gas to said chamber so as to maintain said chamber at said first pressure.

29. The method of producing carbon nanostructures as set forth in claim 28, wherein said step of providing suction includes providing an amount of suction which prevents an appreciable amount of soot from forming on said walls.

30. The method of producing carbon nanostructures as set forth in claim 27, wherein said first electrode includes a bore therethrough, and said method further comprises:

introducing organic vapor and catalyst into said chamber by passing said organic vapor and catalyst through said bore and through said arcs, wherein said catalyst and organic vapor are heated by said first electrode before said organic vapor and catalyst are passed through said arcs.

3. Detailed Explanation of the Invention

BACKGROUND

a. Technical Field of the Invention

5 The present invention relates to an arc electrode structure for synthesis of carbon nanostructures, and a method for producing carbon nanostructures therewith. More particularly, the invention relates to an arrangement of electrodes for producing an arc-plasma discharge to synthesize carbon nanostructures by consumption of carbon-containing electrodes, or by a
10 chemical vapor deposition (CVD) process. Carbon nanostructures that may be produced include single wall nanotubes (SWNTs), multi-wall nanotubes (MWNTs), fullerenes, endohedral metallofullerenes, carbon nanofibers, and other carbon-containing nano-materials.

b. Related Art Exemplifying Problems to be Solved by the Invention

15 In the related art, carbon nanostructures are produced by arc-discharge between one anode and one cathode. See, for example: Japanese 11-263609, published September 28, 1999; "Growth and Sintering of Fullerene Nanotubes" by D.T. Colbert et al., Science Magazine, vol. 266, November 18, 1994; "Fullerene Production" by Lowell D. Lamb et al., Journal of Phys.
20 Chem. Solids, vol. 54, No. 12, pp 1635-143, Elsevier Science, Ltd. Great Britain, 1993; and US Patent 6,063,243. Because only one anode and one cathode are used, a limited arc-plasma region is obtainable. Further, the electrodes include flat surfaces which oppose one another. Because only flat electrode surfaces oppose one another, it is difficult, if not impossible, to
25 control the direction and region of arc-plasma. Consequently, it is difficult to control the final carbon nanostructure produced. Further, the area outside of the arc-plasma region quickly drops in temperature. Due to the limited size of the arc-plasma region, and due to the low temperature outside of the arc-plasma region, the reaction species are quenched quickly, not heat annealed.
30 Such quick quenching of the reaction species leads to a high production of amorphous carbon and other unwanted species, resulting in a low yield of

carbon nanostructures. Therefore, only short SWNTs may be produced by these apparatuses and methods.

The related art anodes typically are carbon rods having catalyst mixed therein. Catalysts having a low boiling or sublimation point easily run out of the hot electrodes and, therefore, are not fully utilized.

During soot generation, soot is generally deposited on the inner walls of the arc electrode chamber and, thus, must be harvested. As noted in "Fullerene Production" by Lamb et al., harvesting soot presents real health risks. Therefore, soot harvesting must be done carefully which typically means slowly and at a large expense. Therefore, soot harvestation is tough work, especially in big chambers.

Lastly, in traditional arc-CVD apparatuses, organic vapor is introduced through an inlet other than the center of the electrode. That is, in the related art structures, gaseous reaction species are introduced to the side of an arc-plasma discharge region. See "Mass production of single-wall carbon nanotubes by the arc plasma jet method", by Ando et al., Chemical Physics Letters 323, Elsevier Science B.V., June 23, 2000. Therefore, the organic vapor is not preheated by the hot electrode, and is not introduced into the arc plasma region completely and evenly, which results in a low yield of SWNTs. Also, neither of the electrodes are cooled with the flowing organic vapor. Moreover, because the organic vapor passes by the side of the arc-plasma region, there is both a considerable amount of unused organic vapor, and a considerable portion of the arc-plasma region that is under-used.

In another typical CVD apparatus, gas is passed through a rotating tube heated by a furnace. In order to keep the tube from melting, however, this process can only be performed at about 1000°C. Therefore, due to this temperature limitation, a large amount—up to about 90%—of the gas is unused or wasted. Accordingly, this process has a very low efficiency.

SUMMARY OF THE INVENTION

Means for Solving the Problems — Advantages of the Invention

An object of the present invention is to solve the above noted problems in the prior art. More specifically, an object of the present invention is an arc electrode structure, and related apparatus, which solves the above noted problems in the prior art. Still another object of the present invention is an arc electrode structure for efficiently producing carbon nanostructures and, in particular, SWNTs, wherein the yield of SWNTs is increased.

The present invention allows the direction and region of arc plasma to be adjusted so that the final product is controllable. That is, because the present invention includes an annular electrode having a sloped surface, the direction and region of arc-plasma easily can be adjusted. Additionally, because the electrode includes a sloped surface, it is automatically cleaned. That is, deposits, that would have otherwise collected on a flat electrode surface, slide off of the sloped surface of the present invention's electrode, thereby cleaning the electrode surface. Further, the sloped surface of the electrode includes a plurality of holes therein for holding catalyst, even as it reaches its boiling or sublimation point. The holes have varying depths so that catalyst is continuously, and uniformly, distributed throughout the arc-plasma region during the entire duration of arc-discharge.

In addition to a sloped surface on one of the electrodes, the present invention includes a plurality of second electrodes disposed in opposition to the first-electrode's sloped surface. The provision of at least two second electrodes contributes to the adjustability of the direction and region of arc-plasma. The second electrodes are positioned so that their arcs combine to produce a larger, hotter, arc-plasma region which leads to a longer reaction time. The longer reaction time, in turn, results in longer SWNTs, and an increased yield thereof.

A further object of the invention is an arc electrode structure which allows the carbon nanostructures easily to be collected, and heat annealed. A first electrode has a central through bore therein. The through bore is

connected to an outlet tube which, in turn, is connected to a collection box and a pump. The pump draws the soot through the central bore and into the collection box so that soot is not deposited on the inner walls of the electrode chamber. In such a manner, the soot is easily, safely, and quickly collected.

5 Further, as the soot is drawn through the central bore of the hot electrode, it is heat annealed, thereby perfecting the nanostructure. That is, as the soot travels along the central bore, the heat from the electrode allows a longer reaction time which produces longer SWNTs, and allows the removal of dangling bonds on the nanostructure.

10 Alternatively, instead of using the first electrode's central through bore to remove soot from the electrode chamber, the central through bore can be used to introduce organic vapor, gas (including inert gas), and catalyst into the electrode chamber. That is, the apparatus of the present invention may be used to build carbon nanostructures, by CVD, from gaseous raw materials
15 instead of from breaking apart carbon electrodes. Thus, by selecting the gasses introduced to the arc-plasma region, the type and size of the carbon nanostructures easily can be controlled. Because the gasses are introduced through the central bore in one of the electrodes, they are preheated before reaching the arc-plasma region, thereby increasing the yield of carbon
20 nanostructures. Similarly, the introduction of gasses through the electrode cools the electrode, thereby increasing safety and the electrode's useful life. Further, because the gasses are introduced through the center of the electrode, and the arc-plasma region is located above the central through bore, the gasses must pass through the arc-plasma region, and a greater portion of the arc-
25 plasma region is used. By introducing the organic vapor in such a manner, the amount of unused gas is reduced, which, in turn, reduces the cost of producing carbon nanostructures.

DETAILED DESCRIPTION OF THE INVENTION

30 The above and other objects and advantages of the present invention will become more apparent by describing in detail preferred embodiments

thereof with reference to the accompanying drawings, wherein like reference numerals designate like or corresponding parts throughout the several views.

Modes for Carrying out the Invention

5 **First Embodiment**

A first embodiment of the present invention is shown in Figures 1-3. The apparatus for producing carbon nanostructures includes a chamber 1, a first electrode 20, one or more second electrodes 40, and an adjusting mechanism 50.

10 The chamber 1 includes walls 2 which bound a chamber interior 5. The walls 2 are structured to allow a cooling fluid to flow therethrough. The cooling fluid may be introduced through a cooling-fluid inlet port 4, and may exit through a cooling-fluid outlet port 8, so as to cool the chamber interior 5. Additionally, the chamber 1 includes an inlet 6 and an outlet 10 so that a gas
15 atmosphere can be produced in the chamber interior 5. The gas atmosphere may include any of the inert gasses such as, for example, helium or argon. Further, the gas atmosphere may include hydrogen, or a mixture of hydrogen and an inert gas, and is typically about 300 Torr to about 760 Torr. The particular composition of the gas atmosphere depends on which carbon
20 nanostructure one desires to produce. Further, the chamber additionally includes an observation window 12 so that the user may observe the first electrode 20 and one or more second electrodes 40 disposed in the chamber interior 5.

The first electrode 20 includes a first end 21, a second end 33, and a
25 body 27 extending along a longitudinal axis 31 therebetween. The body 27 has a blind central bore 29 disposed therein. That is, the central bore 29 does not extend entirely through the first electrode 20 from the first end 21 to the second end 33. The first electrode 20 is connected to a voltage potential, and is mounted within the chamber interior 5, by a connector 14 mounted to the
30 second end 33.

The first end 21 includes a sloped surface 23 which slopes toward the central bore 29. The sloped surface 23 is disposed at an angle θ with respect to the longitudinal axis 31. See Figure 3. The angle θ may be from about 20° to about less than 60°, but preferably is between about 30° and about 45°. The angle θ is chosen so that the sloped surface 23 affects cleaning of the first electrode 20, and also affects the shape of the arc between the first electrode 20 and the one or more second electrodes 40.

The sloped surface 23 assists in cleaning the first end 21 of the first electrode 20 during production of carbon nanostructures. That is, when a voltage is applied across the first electrode 20 and the one or more second electrodes 40, deposits tend to form on the first end 21. Due to the sloped surface 23, however, the deposits slide off of the first end 21 and into the central bore 29. As angle θ becomes larger, the sloped surface 23 flattens, and deposits will not slide off thereof.

Additionally, the sloped surface 23 assists in forming the shape of the arc produced by the first 20 and second 40 electrodes. When two or more second electrodes 40 are used, as is preferred, the sloped surface 23 allows the direction and region of arc plasma to be adjusted so that the final product may be controlled. That is, as the angle θ becomes smaller, the arc plasma region of each second electrode 40 is directed more toward the center of the first electrode 21 and less of the arc-plasma region is located above the end of the second electrode 40, i.e., less is located radially outward along the sloped surface 23 of the first electrode 20. And when the arcs plasma regions from two or more second electrodes 40 are directed toward the center of the first electrode 21, the arcs combine and, thereby, produce an even larger, hotter, arc-plasma region which increases the reaction time. Consequently, yield and size of carbon nanostructures are increased. As the angle θ becomes large, the first end 21 of the first electrode 20 flattens and approaches the conventional art electrode structure—i.e., that where $\theta = 90^\circ$ —in which it is difficult, if not impossible, to control the direction and region of arc plasma.

Further, as shown in Figure 2, the sloped surface 23 has a plurality of holes 25 disposed thereon. The holes 25 hold catalysts used during the production of carbon nanostructures. Because catalyst is held in the holes 25, it is easy to change catalysts for different discharges. That is, the first electrode 20 is not consumed during discharge, so the holes 25 retain their shape and ability to hold catalyst. Therefore, the holes 25 merely need to be cleaned out and filled with a new catalyst.

Each of the holes 25 has a depth of from about 2 mm to about 10 mm, but preferably about 5 mm. If the holes 25 are too deep, the catalyst will melt, settle at the bottom of the hole and, thus, not be available for reaction at the sloped surface 23 of the first electrode 20. Thus, a depth is chosen so that even when the catalyst melts or sublimes, it is held in the hole 25 and is close enough to the sloped surface 23 so that it can be used.

Further, each of the holes 25 has a diameter from about 3 mm to about 10 mm, when the diameter of the first-electrode first end 21 is about 20 cm, and the diameter of the central bore 29 is about 4 cm. Preferably, however, the diameter of each hole 25 ranges from about 4mm to about 8 mm. If the diameter of each hole 25 becomes too large, a sufficient number of holes cannot be produced on the sloped surface 23 and, therefore, a sufficient amount of catalyst is not available for reaction. The same is true for either an increase in the diameter of the central bore 29, or an decrease in the diameter of the first-electrode first end 21, which respectively may range from about 0 cm to about 6 cm, and from about 5 cm to about 30 cm. Also, when the diameter of the holes 25 is too large, it is difficult to obtain a desirable distribution of holes 25 in relation to surface area of the first electrode 20.

Figure 2 shows the holes 25 as having the same diameter, but it is not necessary that they do. Further, it is not necessary for the holes 25 to each have the same depth. In fact, it is preferable that the holes 25 have different depths so as to continuously provide catalyst from the beginning of arc-discharge until the second electrodes 40 are consumed. That is, some of the holes 25 are shallow so that catalyst quickly evaporates therefrom, whereas

other ones of the holes 25 are deeper so that the catalyst evaporates more slowly and over a longer period of time. What is important is that the holes 25 are distributed over the sloped surface 23 so as continuously to supply catalyst, by evaporation, to the arc-plasma region from the beginning of arc-discharge until the second electrodes 40 are consumed. And the more holes 25 that are present, the easier it is to achieve such a continuous, uniform, supply of catalyst during the arc-discharge.

Although the first electrode 20 is shown as being circular in cross section, any other cross-sectional shape may be used such as, for example, elliptical, rectangular, square, pentagon, hexagon, octagon, etc. Further, in this embodiment, the first electrode 20 is made of graphite—to withstand the temperature of the arc-plasma region which, during operation, is about 4000°C—and is connected to a negative voltage potential thereby making it the cathode.

Further, the first electrode 20 may be rotated during arc-discharge. By rotating the first electrode 20, it is easier to supply catalyst continuously throughout the time that the second electrodes 40 are consumed, and it is easier to uniformly supply catalyst to the arc plasma region. That is, by rotating the first electrode 20, the holes 25—which hold the catalyst—are moved through the arc-plasma region, and some holes 25 which may be outside of the arc-plasma region are brought into and through the arc-plasma region. Thus, catalyst is continuously and more evenly distributed throughout the arc-plasma region.

One or more second electrodes 40 are disposed in the chamber 1 so as to oppose the sloped surface 23 of the first electrode 20. When more second electrodes 40 are used, a bigger and hotter arc-plasma region can be produced. Further, the convergence, or overlap, of the arcs makes the arc-plasma region more uniform in temperature. Each of the second electrodes 40 includes a first end 41 and a second end 42. The first ends 41 are connected to an adjusting mechanism 50, whereas the second ends 42 oppose the sloped surface 23 so as to form a gap 47 between each second end and the sloped surface 23. The gap

47 is measured from the center of the second end 42 to the sloped surface 23 along a line perpendicular to the sloped surface 23, because the second electrode 40 is quickly consumed during arc-discharge and obtains a sloped surface roughly parallel to that of the sloped surface 23. In this embodiment, the second electrodes are connected to a positive voltage potential and, thus, are anodes. Further in this embodiment, because catalyst is supplied by the holes 25 in the first electrode 20, each of the second electrodes may be made of pure carbon. And pure carbon rods are less expensive than ones which include catalyst therein. Of course, one or more of the second electrodes 40 may include catalyst therein even though catalyst is supplied by the holes 25 in the first electrode 20.

The adjusting mechanism 50 connects the second electrodes 40 to the chamber 1, and to a voltage potential. The adjusting mechanism 50 includes a plate 52, a screw-threaded stud 54, and a nut 56.

The plate 52 mounts the second electrodes 40 so that the second electrodes are adjustable with respect to one another. That is, when two second electrodes 40 are used, they are adjustably spaced by a distance 45. The distance 45 is adjustable because the second electrodes are mounted to the plate 52 so that they may move toward and away from each other in the direction of arrow B. Although only two second electrodes 40 are shown in this embodiment, any number of second electrodes 40 may be used. Increasing the number of second electrodes 40 increases the possible size of the arc plasma region, increases the temperature and, hence, increases the amount of carbon nanostructures that can be produced. And when more than two second electrodes 40 are used, the plate 52 includes a mounting structure which allows each of the second electrodes 40 to be moved with respect to the remaining second electrodes 40 so that the distance 45 between each of the second electrodes 40 is adjustable. In a preferred embodiment of the invention, the distance 45 is set to about 8 cm which causes a desirable combination of the arcs. When numerous second electrodes 40 are present, they may be set on a circle having a diameter of a length equal to that of spacing 45.

Additionally, the screw-threaded stud 54 is attached to the plate 52, and extends through a wall 2 in the chamber 1. The nut 56 is attached to the screw-threaded stud 54 to mount the plate 52 and, hence the second electrodes 40, within the chamber interior 5. The nut 56 and screw-threaded stud 54
5 allow the second electrodes to be moved in the direction of the arrow A, so as to adjust the distance of gap 47. The nut 56 may either be adjusted manually, or by an auto-controller (not shown), to position the second electrodes 40 in relation to the first electrode 20. In a preferred embodiment of the invention, the distance of the gap 47 is set in the range of from about 2 mm to about 5mm,
10 and preferably in the range of from about 2 mm to about 3 mm. If the gap 47 is too large, no arc will be produced, whereas if the gap 47 is too small, only a small arc plasma region will be produced. Again, a larger sized arc plasma region produces a longer reaction time which results in larger carbon nanostructures as well as a higher yield of such structures.

15 The structure of the adjusting mechanism is not critical to the invention, and may be any mechanism that allows connection of the second electrodes 40 to a voltage potential, as well as one which allows adjustment of the distance 45 between second electrodes 40, and adjustment of the gap 47.

A preferred operation, for producing SWNTs, using this embodiment
20 of the present invention will now be described.

The first electrode 20, made of graphite and having a sloped surface 23 at an angle θ of about 30° with the longitudinal axis 31, is disposed below the second electrodes 40, of pure carbon having a diameter of about 10mm, so that unwanted deposits are collected in the blind central bore 29.

25 The holes 25 in the sloped surface 23 are filled—usually to their tops—with catalyst such as, for example, sulfur, phosphorous, nickel, yttrium, cobalt, or mixtures thereof. The type of catalyst depends on the type of carbon nanostructures to be produced. For example, by changing the catalyst any one or more of the following carbon nanostructures efficiently can be produced:
30 single-wall nanotubes (SWNTs); multi-wall nanotubes (MWNTs); fullerenes, endohedral metallofullerenes, carbon nanofibers; and other nanostructures.

For the production of SWNTs, a sulfur catalyst produces larger diameter tubes. An important feature of this embodiment is that the graphite first electrode 20 easily supplies catalyst to the arc-plasma region because it includes holes 25 on its sloped surface 23. That is, the catalyst easily can be introduced into the holes 25 and, thereafter, conveniently is supplied to the arc-plasma region. Further, because the first electrode 20 is not consumed, the holes 25 hold their shape even during arc-discharge. Therefore, the holes 25 hold the catalyst even after it reaches its boiling or sublimation point; the catalyst does not run out of the first electrode 20.

10 The chamber interior 5 is then filled with a gas atmosphere including inert gasses such as He or Ar, a gas such as H_2 , or a mixture thereof. Although any inert gas may be used, an atmosphere including H_2 tends to produce longer length SWNTs, whereas an atmosphere including He tends to produce shorter ones (note that in order to produce fullerenes, a He atmosphere must be used).
15 After the gas atmosphere is produced in the chamber interior 5, valves on the chamber inlet 6 and chamber outlet 10 are closed so as to maintain a static gas atmosphere of about 500 Torr of H_2 .

The second electrodes 40 are spaced at about 8 cm from one another which produces a combination arc having a large arc-plasma region. The first
20 electrode 20 and second electrodes 40 are then brought into opposition with one another across a gap 47 of about 2 mm to about 3 mm.

Further, the first electrode 20 is connected to a negative voltage potential to act as a cathode, whereas the second electrodes 40 are connected to a positive voltage potential to act as anodes. A direct current (DC) voltage
25 of between about 30 and about 35 volts, with a current of about 200 amps, is then applied to the first 20 and second 40 electrodes thereby producing an arc-plasma region by arc-discharge. The arc-discharge is carried out for about 30 minutes to about 1 hour to consume the anodes. As the second electrodes 40 are consumed, the adjusting mechanism 50 is operated to move the second
30 electrodes 40 toward the first electrode 20 so as to maintain the voltage between about 30 and about 35 volts. The soot produced by consumption of

the electrodes 40 includes the desired carbon nanostructures, and is disposed on the inner walls 3 of the chamber 1.

Under the above conditions, a soot production rate of about 0.3 to about 1 g/min is achieved, wherein the yield of SWNTS is greater than
5 50 wt%. The SWNTs produced typically are about 1.2 to about 1.8 nanometers in diameter, and are greater than about 100 micrometers in length.

Although DC voltage was described in the above operation of the apparatus, an alternating current (AC) voltage may also be used with the apparatus of the present invention. Further, although a current of about 200
10 amps is preferred, a current from about 100 to about 300 amps may be used.

Second Embodiment

A second embodiment of the present invention is shown in Figure 4. Elements similar to those shown and described in connection with the first
15 embodiment are given like reference numerals and, therefore, a description of such elements is omitted here.

In this embodiment of the present invention, the chamber 1 includes an outlet tube 16, a collection box 18, and a pump 19. The outlet tube 16 is connected to the first electrode 20 and to the collection box 18. The collection
20 box 18, in turn, is connected to the pump 19. Further, the first electrode 20 includes a central bore 29' which extends entirely through the first electrode 20, and which is connected to the outlet tube 16.

Thus, the interior of the chamber 5 is in communication with the pump 19 so that soot, produced by an arc-discharge between the first 20 and second
25 40 electrodes, easily can be collected in the collection box 18 by operating the pump 19 to cause a flow from the chamber interior 5 to the collection box 18. The flow rate from the chamber interior 5 is set to a value sufficient to prevent an appreciable amount of soot from collecting on the inner wall surfaces 3. As the pump 19 draws soot and gas from the chamber interior 5, the chamber inlet
30 6 allows a corresponding amount of gas into the chamber interior 5 so as to maintain the pressure in the chamber interior 5.

This embodiment thus has the advantage of easily collecting soot. The soot, which includes byproducts and the desired carbon nanostructures, is collected in the collection box 18 instead of being deposited on the inner wall surfaces 3 of the collection chamber 1. That is, because an appreciable
5 amount of soot is not formed on the inner wall surfaces 3 of the chamber 1, a lengthy, costly, and perhaps unsafe, soot collection process does not need to be carried out.

A further advantage of this embodiment is that the carbon nanostructures are heat annealed as they are drawn, together with the soot,
10 through the central bore 29' of the first electrode 20. The first electrode 20 is heated by the arc-discharge. The surface of the first-electrode first end 21 reaches about 4000°C, whereas the body 27 cools as it extends away from the first end 21. Therefore, a temperature gradient is formed along the central bore 29'. As the soot is drawn through this temperature gradient, the carbon
15 nanostructures in the soot are allowed to react longer, and become more perfect. That is, the carbon nanostructures are heat annealed, to eliminate dangling bonds, as they are drawn through the central bore 29' of the first electrode 20. The longer reaction time produced by this embodiment of the present invention may also lead to longer nanotubes and increased yield. In
20 the production of metallofullerenes, such longer reaction time is particularly beneficial. In a preferred embodiment of the invention, the central bore 29' is about 30 cm to allow for heat annealing of the carbon nanostructures.

Figure 4 shows the first electrode 20 disposed above the second electrodes 40 so that deposits formed on the first electrode 20 slide off to the
25 bottom of the chamber interior 5. In such a configuration, the catalyst—in the amount of about 7.5 to about 20 wt%—is contained in the second electrodes 40. But the first electrode 20 may be disposed below the second electrodes 40 and, thus, operate to supply catalyst as in the first embodiment. The advantage of being able to supply catalyst with the first electrode 20 may outweigh the
30 disadvantage of collecting unwanted electrode deposits along with the desired

nanostructures, as would occur with the first electrode 20 positioned below the second electrodes 40.

Third Embodiment

5 A third embodiment of the present invention is shown in Figure 5. Elements similar to those shown and described in connection with the first and second embodiments are given like reference numerals and, therefore, a description of such elements is omitted here. However, in this embodiment, carbon nanostructures are built up from carbon components introduced in a
10 gaseous state. That is, this embodiment is a CVD process.

 The chamber 1, for this embodiment, has an inlet tube 16', and a chamber outlet 10; a chamber inlet 6 is not necessary, but can be included if desired. That is, the inlet tube 16' is connected to the central through bore 29', of the first electrode 20, to supply gas to the arc-plasma region and to the
15 chamber interior 5. An equivalent amount of gas is let out of the chamber 1, through chamber outlet 10, so as to maintain constant the pressure in the chamber interior 5 during arc-discharge.

 It is from the components of the gas introduced through the central bore 29' that carbon nanostructures are produced, or are built up. That is, a
20 gas containing catalyst and raw material for the carbon nanostructures is supplied to the arc-plasma region through central through bore 29'. In the arc-plasma region, sufficient energy is added to the gas to cause a reaction which produces carbon nanostructures. Before the gas reaches the arc-plasma region, however, it passes through the central throughbore 29' of the first electrode 20,
25 which is heated by the arc-discharge. Thus, the gas is preheated before it reaches the arc-plasma region. Because the gas is preheated, a better yield of carbon nanostructures is achieved.

 The gas includes catalyst and raw materials for the production of carbon nanostructures and, therefore, it is easy to control the size and
30 production of carbon nanostructures. That is, the flow rate and concentration of the gas introduced controls the type and amount of nanostructures that are

produced. For example, the gas may include organic vapor mixed with inert gas and catalyst. In such an arrangement: the organic vapor may include any one or more of CH_4 , $\text{CH}_2=\text{CH}_2$, $\text{CH}\equiv\text{CH}$, $\text{CH}_3\text{CH}_2\text{CH}_3$; whereas the catalyst may include S, thiol thiophene, $\text{C}_{10}\text{H}_{10}\text{Fe}$, $\text{C}_{10}\text{H}_{10}\text{Ni}$, or $\text{C}_{10}\text{H}_{10}\text{Co}$, used alone or
5 in combination. Additionally, in this embodiment, the interior chamber 5 has an atmosphere which includes H_2 , because the hydrogen cleans the surface of the catalyst, thereby increasing the yield of carbon nanostructures produced. Hydrogen can also be introduced with the organic vapor and catalysts. Further, the interior chamber has a pressure of about 1 atmosphere.

10 Although in this embodiment, catalyst is introduced in a gaseous state, the catalyst can also be contained either in the first electrode 40 or in the second electrodes 40 as in the previous embodiments. That is, the catalyst can be added to the arc-plasma region in any one or more of the following three manners: a) by the gas introduced through the inlet tube 16'; b) by the holes
15 25 in the first electrode 20; or c) by the second electrodes 40.

Further, the structure of the present invention leads to an increased efficiency in carbon nanostructure production. As noted above, the sloped surface 23 of the first electrode 20 allows control of the direction and region of arc-plasma. Hence, by selecting an appropriate angle θ , second electrode
20 spacing 45, and electrode gap 47, the arc-plasma region can be uniformly produced over a large area above the central opening 29'. Thus, because the gas is introduced through the center of the first electrode 20, and the arc-plasma region is uniformly disposed over the central opening 29', the gas is uniformly consumed due to a more complete utilization of the entire arc-
25 plasma region. That is, very little of the gas introduced through central bore 29' remains unconsumed because the gas must pass through the arc-plasma region. Moreover, because the gas is passed through an arc-plasma region having a temperature of 4000°C —which is much higher than that used in typical CVD processes—the present invention achieves a much higher
30 efficiency than that of typical CVD processes. Thus, carbon nanostructures efficiently can be produced with this embodiment of the invention.

Because the sloped surface 23 allows control of the arc-plasma region, it is possible to use only one second electrode 40, although such is not preferred. That is, it is possible to control the direction and region of arc-plasma from one second electrode 40 so that such arc-plasma region is disposed over the central opening 29'. Such arc-plasma region is not as large as that achieved with two or more second electrodes 40, however, and thus does not allow as much production capacity, yield, and quality of carbon nanostructure as in the case of two or more second electrodes 40.

In this embodiment, the main source of carbon nanostructure production is by building them up from components of a gas—although some are produced by consumption of the second electrodes 40. Therefore, it is desirable to have a slow consumption of the second electrodes 40 in order to lengthen the time for arc-discharge which, in turn, increases the amount of carbon nanostructures which can be produced with one set of electrodes 40. In order to increase the duration of arc-discharge, the first electrode 20 is connected to a positive voltage potential so as to act as an anode, whereas the second electrodes 40 are connected to a negative voltage potential so as to act as a cathode. That is, the voltage potentials are switched from the arrangements used in the first and second embodiments in order to slow consumption of the second electrodes 40.

In this embodiment, similar to the first embodiment, the soot containing carbon nanostructures is deposited on the inner wall surface 3 of the chamber 1.

It is contemplated that numerous modifications may be made to the arc electrode assembly of the present invention without departing from the spirit and scope of the invention as defined in the claims.

4. Brief Description of the Drawings

Figure 1 is a schematic view of a chamber and arc electrodes, according to a first embodiment of the present invention, for producing carbon nanostructures;

Figure 2 is a schematic partial cross-sectional view, as taken along line II-II of Figure 1, of the arc electrodes;

Figure 3 is a schematic side view of one of the arc electrodes as shown in Figure 1;

Figure 4 is a schematic view of a chamber and arc electrodes, according to a second embodiment of the present invention, for producing carbon nanostructures; and

Figure 5 is a schematic view of a chamber and arc electrodes, according to a third embodiment of the present invention, for producing carbon nanostructures.

Description of Reference Numerals

	1	chamber
	2	chamber walls
	3	inner wall surface
5	4	cooling fluid inlet
	5	chamber interior
	6	chamber inlet
	8	cooling fluid outlet
	10	chamber outlet
10	12	observation window
	14	connector
	16	outlet tube for first electrode
	16'	inlet tube for first electrode
	18	collection box
15	19	pump
	20	first graphite electrode
	21	first end of first electrode
	23	sloped surface
	25	holes in sloped surface of first electrode
20	27	body of first electrode
	29	central blind bore
	29'	central through bore
	31	longitudinal axis of first electrode
	33	second end of first electrode
25	40	second electrode(s)
	41	first end of second electrode(s)
	42	second end of second electrode(s)
	45	spacing between second electrodes
	47	gap between first and second electrodes
30	50	adjusting mechanism
	52	plate
	54	screw-threaded stud
	56	nut
	A	horizontal adjustment direction
	B	vertical adjustment direction

FIG. 1

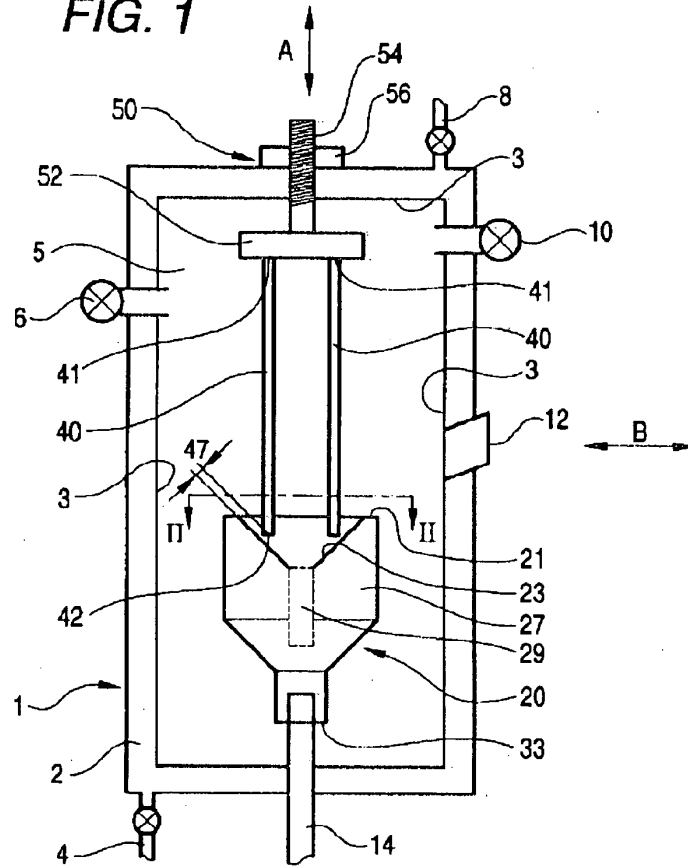


FIG. 2

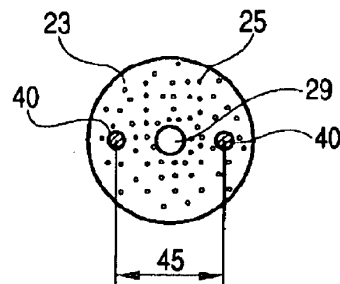


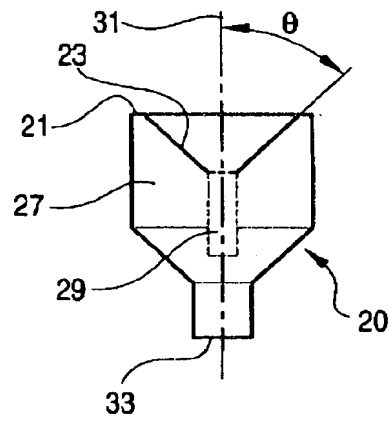
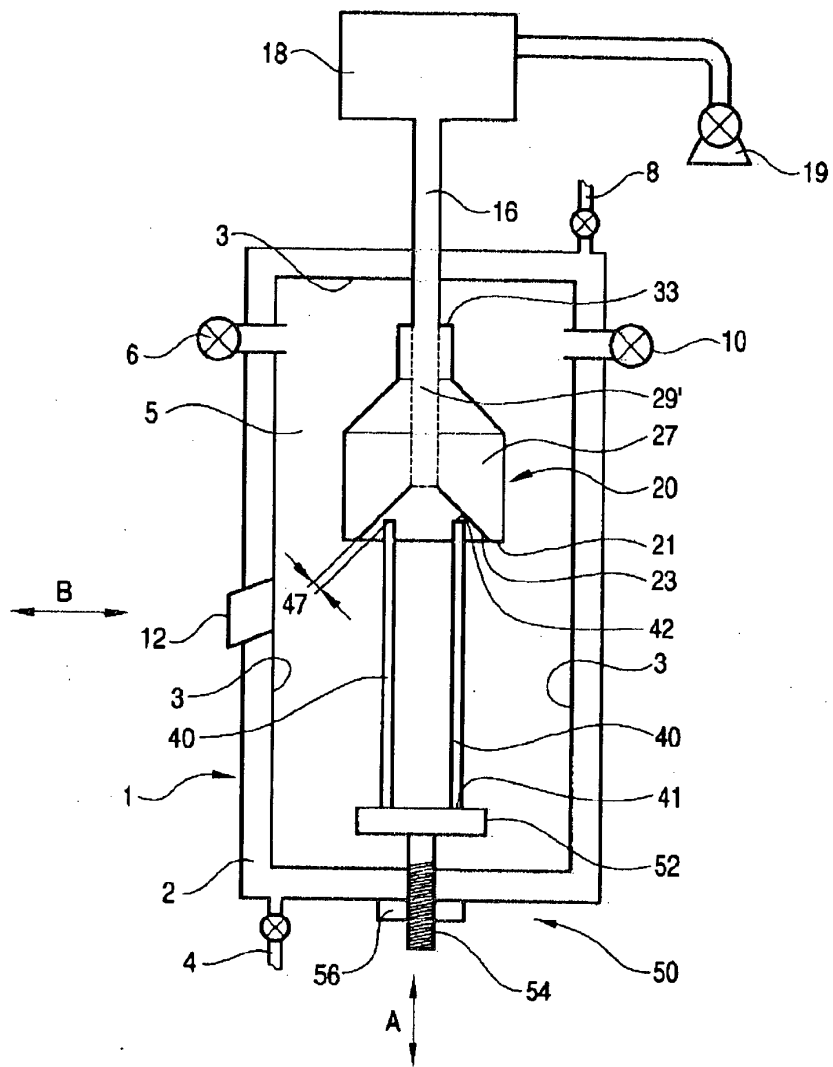
FIG. 3

FIG. 4



1. Abstract

An arc electrode structure, for producing carbon nanostructures, which includes a first electrode and two or more second electrodes disposed within a chamber. The electrodes are connected to a voltage potential to produce an arc-plasma region. The first electrode has a sloped surface with a plurality of holes therein for holding catalyst. The first electrode's sloped surface, and the positioning of the plurality of second electrodes allows control of the direction and region of arc-plasma. Further, the first electrode has a central bore which may be either a blind bore, or a through bore. The blind bore collects unwanted deposits that slide off of the sloped surface of the first electrode. The throughbore either allows soot and carbon nanostructures to be removed from the chamber, or allows organic vapor to be introduced into the chamber. When the throughbore is used to introduce organic vapor into the chamber, the vapor is directed through the arc-plasma region so that carbon nanostructures are built up by a CVD process rather than being broken off of carbon electrodes.

2. Representative Drawing

THIS PAGE BLANK (USPTO)

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.

THIS PAGE BLANK (USPTO)